

WEST**End of Result Set**

Generate Collection

Print

JP 57-100128

L7: Entry 4 of 4

File: DWPI

Jun 22, 1982

DERWENT-ACC-NO: 1982-62792E
DERWENT-WEEK: 198230
COPYRIGHT 2003 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Epoxy! resin compsn. - consists of polyfunctional epoxy! resin, novolak cpd. as hardener, and 2-methyl imidazole pyromellitic anhydride salt as curing assistant

PATENT-ASSIGNEE:

ASSIGNEE

MATSUSHITA ELECTRIC WORKS LTD

CODE

MATW

PRIORITY-DATA: 1980JP-0176107 (December 13, 1980)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO	PUB-DATE	LANGUAGE	PAGES	MAIN-IPC
JP 57100128 A	June 22, 1982		004	
JP 86054326 B	November 21, 1986		000	

APPLICATION-DATA:

PUB-NO	APPL-DATE	APPL-NO	DESCRIPTOR
JP 57100128A	December 13, 1980	1980JP-0176107	

INT-CL (IPC): C08G 59/62; H01L 23/30

ABSTRACTED-PUB-NO: JP 57100128A

BASIC-ABSTRACT:

The epoxy resin compsn. consists of (1) polyfunctional epoxy resin (2) novolak type cpd. as hardener and (3) 2-methyl imidazol-pyromellitic anydride salt as curing assistant.

(2) and (3) are used in amts of 10 - 100 and 1 - 10 pts.wt. respectively per 100 pts.wt. of (1). (1) has an epoxy equiv. of 100-4000 and includes bisphenol type, alicyclic, novolak type, nitrogen-contg. and halogenated epoxy resins. (2) is obtained by interaction of phenol and formaldehyde in the presence of acidic catalyst. The compsn. may contain 30 - 80 wt.% filler e.g. (fused) silica, quartz glass powder, calcium carbonate, clay, talc, etc.

Compsn. can be filled under low pressure and exhibits excellent transfer formability. It is esp. useful for sealing semi-conductor devices such as IC and LSI.

TITLE-TERMS: POLYEPOXIDE RESIN COMPOSITION CONSIST POLYFUNCTIONAL POLYEPOXIDE RESIN NOVOLAK COMPOUND HARDEN METHYL IMIDAZOLE PYROMELLITIC ANHYDRIDE SALT CURE ASSIST

DERWENT-CLASS: A21

CPI-CODES: A05-A01B; A05-C03; A08-D; A08-D04; A12-E04; A12-E07C;

BEST AVAILABLE COPY

⑨ 日本国特許庁 (JP)

⑩ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報 (A)

昭57—100128

⑪ Int. Cl.³
C 08 G 59/62
// H 01 L 23/30

識別記号

庁内整理番号
7342—4 J
7738—5 F

⑬ 公開 昭和57年(1982) 6月22日

発明の数 1
審査請求 未請求

(全 4 頁)

⑭ エポキシ樹脂組成物

門真市大字門真1048番地松下電
工株式会社内

⑮ 特 願 昭55—176107

⑯ 発 明 者 橋田義弘

⑰ 出 願 昭55(1980)12月13日

門真市大字門真1048番地松下電
工株式会社内

⑱ 発 明 者 松村昌弘

⑲ 出 願 人 松下電工株式会社

門真市大字門真1048番地松下電
工株式会社内

門真市大字門真1048番地

⑳ 発 明 者 大津正明

㉑ 代 理 人 弁理士 松本武彦

明 細 書

1. 発明の名称

エポキシ樹脂組成物

2. 特許請求の範囲

(1) 多官能エポキシ樹脂、硬化剤としてのノボラック系化合物および硬化助剤としての2-メチルイミダゾール・無水ピロメリット酸塩が配合されているエポキシ樹脂組成物。

(2) 多官能エポキシ樹脂100重量部に対して2-メチルイミダゾール・無水ピロメリット酸塩が1～10重量部配合されている特許請求の範囲第1項記載のエポキシ樹脂組成物。

3. 発明の詳細な説明

この発明は、成形性(低圧充填性)の優れたエポキシ樹脂組成物、特にIC、LSI封止用として最適なエポキシ樹脂組成物に関するものである。

トランジスター、IC、LSI等の半導体装置は、一般に、大量生産可能なトランスファー成形で樹脂封止されているが、トランスファー成形を行う場合、低圧で充分流動性のある封止材料を用い

いと、IC、LSI等の素子の断線が起こり、高価な半導体装置が不良品になってしまふ。しかし、従来の市販品を含む材料には、低圧流動性を満足させるものはほとんどないのが現状である。

この発明者らは、このような情況に鑑み、低圧流動性に優れ、しかも速硬化かつ貯蔵安定性に優れた半導体装置封止用エポキシ樹脂組成物を得るために鋭意研究した結果、多官能エポキシ樹脂に、硬化剤としてノボラック系化合物を配合するとともに、硬化助剤として2-メチルイミダゾール・無水ピロメリット酸塩を配合すると、所期の目的を達成しうることを見いだしこの発明を完成するに至った。

すなわち、この発明は、多官能エポキシ樹脂、硬化剤としてのノボラック系化合物および硬化助剤としての2-メチルイミダゾール・無水ピロメリット酸塩が配合されているエポキシ樹脂組成物をその要旨とするものである。

この発明で用いるエポキシ樹脂は、分子内に少なくとも2個のエポキシ基を有する化合物であれ

は特に限定しない。しかし一般的には、エポキシ当量100～4000の通常のエポキシ樹脂が用いられる。例えば、ビスフェノール系エポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂、ノボラック系エポキシ樹脂、含窒素エポキシ樹脂ならびにブロム化エポキシ樹脂のようなハロゲン化エポキシ樹脂があげられる。

また硬化剤として用いるノボラック系化合物としては、フェノール、クレゾール、キシレノール、レゾルシン等のフェノール類とホルムアルデヒドのようなアルデヒド類とを酸性触媒下で反応させて得られるものがあげられる。このようなノボラック系化合物の配合量は、エポキシ樹脂100重量部（以下「部」と略す）に対して、10～100部が好ましい。この範囲をはずれると、いずれの場合も硬化不足となり、硬化物の耐熱性、耐薬品性が劣るようになるからである。

この発明では、硬化促進剤として、2-メチルイミダゾール・無水ピロメリット酸塩を用いる。このように、硬化促進剤として2-メチルイミダゾール・無水ピロメリット酸塩を用いることがこ

料をつくる場合は、つぎのようにして行われる。すなわち、この発明のエポキシ樹脂組成物およびその他の充填材等を混合する。混合は、ミキシングロールや加圧ニーダー等の汎用の混合機械を使用して行えばよい。ついで混合物を微粉砕し必要に応じてタブレット化してトランスファー成形材料とする。

この発明の樹脂組成物からつくられた成形材料は、低圧流動性に優れ、速硬化性、かつ材料の保存安定性が良好であるため、IC、LSIの封止用として最適であり、封止される半導体装置の成形時の不良率の低減を実現しうるようになるのである。

つぎに実施例について比較例と併せて説明する。まず、つぎのようにして硬化助剤および硬化剤を合成した。

（硬化助剤の合成）

無水ピロメリット酸109部をTHF 109部に溶解させた液をフラスコに入れた。他方、滴下ロート中に、2-メチルイミダゾール82部をTHF 82

の発明の特徴である。他のイミダゾール誘導体および有機酸の錯塩を用いても、この発明のような低圧流動性に優れたエポキシ樹脂組成物は得られないのである。硬化促進剤の量は、エポキシ樹脂100部に対して1～10部が好ましい。1部未満では硬化が遅く、また10部を超えると貯蔵安定性が悪くなる欠点が生じてくるからである。

なお、本発明のエポキシ樹脂組成物には、半導体装置封止剤として各種の充填剤を配合することが好ましい。例えば、シリカ、溶融シリカ、石英ガラス粉、炭酸カルシウム、クレー、タルク、けいそう土、マイカ、ケイ酸ジルコニウムなどがあげられ、全材料に対して30～80重量％（以下「％」と略す）用いることができる。

離型剤としては、モンタナワックス、カルナウバワックス、ステアリン酸、ステアリン酸金属塩などが用いられる。さらに必要に応じて難燃化剤、表面処理剤、染料料などを用いることもできるのである。

この発明のエポキシ樹脂組成物を用いて成形材

部に溶解させた液を入れた。常温で2-メチルイミダゾール液をフラスコ中に滴下していくと、すぐに炭黄色の沈澱が生じ、この沈澱を濾過し、乾燥させて2-メチルイミダゾール・無水ピロメリット酸塩を得た。実施例はもとより、比較例に用いる硬化助剤もこの方法と同様にして得られたものである。

（硬化剤の合成）

フェノール94部、87％ホルマリン64.9部、硫酸0.27部を攪拌器、冷却器、温度計を備えたフラスコに入れ、100℃で100分間反応させた。その後、薄膜乾燥脱水で水を取り除き、最終160℃で60分間反応させ脱硫酸を行なってフェノールノボラックを得た。このノボラックは、遊離フェノール0.2％で数平均分子量700であった。またOH当量は104.2であった。

つぎに、上記の硬化助剤および硬化剤を用いてつぎのようにして成形材料を得た。

（実施例1～8、比較例1～5）

各原料を下記のように配合した。

クレゾールノボラック型エポキシ樹脂 (エポキシ当量 207.9, YDCN 220L, 東都化成社製) : 100 部

フェノールノボラック (OH 当量 104.2) : 50.1 部

硬化促進剤: 次表に示すものを同表に示す量用いた。

溶融シリカ (S-1, 電気化学工業社製) : 360 部

ステアリン酸亜鉛 : 3 部

カーボンブラック : 1 部

エポキシシラン (KBM408, 信越化学社製) : 1 部

上記配合物を 100~120℃においてミキシングロールで 20~80 分間混練し、円板延び (測定条件は次表の米 3 の保存安定性の場合と同じ) で 150~170℃になった時、混練をやめ、シート状材料をとり出し、冷却粉碎してエポキシ樹脂成形材料を得た。

(実施例 4, 5)

エポキシ樹脂として、エポキシ当量 190 のもの (N-740, 大日本インキ社製) を 100 部用い、フェノールノボラック (OH 当量 104.2) の量を 54.8 部にした。それ以外は上記と同様にしてエポキシ樹脂成形材料を得た。

以上の実施例および比較例で得られたエポキシ樹脂成形材料の特性およびそれを用いて製造した成形品の不良数を求めて次表に示した。実施例のものは、ふくれおよび断線がなく極めて優れていることがわかる。

(以下 余 白)

	硬化促進剤 (部)	流動性 (見かけ粘度, poise)	硬化性 (反応速度定 数, sec ⁻¹)	保存安定性 (日)	不良数	
					ふくれ	断線
実施例 1	A	2.6 × 10 ⁴	4.5 × 10 ⁻³	> 15	0/50	0/50
2	5	8 × 10 ⁴	6 × 10 ⁻³	> 15	0/50	0/50
3	10	4 × 10 ⁴	8 × 10 ⁻³	> 15	0/50	0/50
4	8	2.8 × 10 ⁴	5 × 10 ⁻³	> 15	0/50	0/50
5	5	8.5 × 10 ⁴	5.5 × 10 ⁻³	> 15	0/50	0/50
比較例 1	0.5	2 × 10 ⁴	1 × 10 ⁻³	> 15	28/50	0/50
2	12	1 × 10 ⁵	8 × 10 ⁻³	< 8	0/50	30/50
3	5	1.5 × 10 ⁵	7.5 × 10 ⁻³	< 8	0/50	40/50
4	5	9 × 10 ⁴	8 × 10 ⁻³	< 8	0/50	25/50
5	5	9.7 × 10 ⁴	6 × 10 ⁻³	< 8	0/50	28/50

(註) 硬化促進剤

A ... 2-メチルチンイミダゾール・無水ジプロピリット酸塩
B ... 2-メチルチンイミダゾール・無水フタル酸塩
C ... 2-メチルチンイミダゾール・無水アジピン酸塩
D ... 2-エチルチンイミダゾール・無水ジプロピリット酸塩

なお、上記の表の試験はつぎのようにして行った。

※1 流動性 (100℃で測定)

試料 1.3 g をタブレット成形し、このサンプルを図面の流動評価金型 1 のシリンダー部 (2 cd) 2 に入れ、プランジャー 8 で 50, 100, 200 mm/min の速度でサンプル 4 をノズル (2 φ-8 L) 5 から押し出した時のせん断応力とせん断速度から見かけ粘度を計算した。

※2 硬化性

試料 2.2 g のタブレットをキュラストメーターに掛けて硬化曲線を得た。そしてこの曲線から反応速度定数を求めた。なお、キュラストメーター条件はつぎのとおりに設定した。

圧 力 : 40 kg/cm²

温 度 : 170℃

下金型振動数 : 6 回/分

上, 下金型クリアランス : 0.4 mm

※3 保存安定性

40℃で成形材料を放置し、流動性 (円板延び

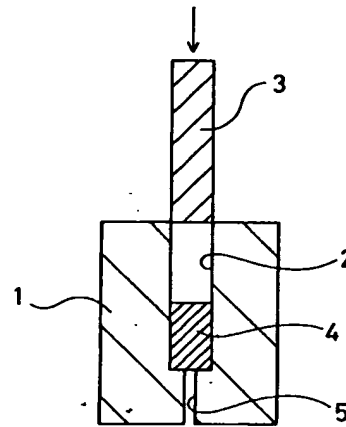
で測定、26.5 MPa、ラム径180 μm 、160℃で
ゲージ圧15 kg/cm^2 の低下が初期の10%になっ
たときの放置時間で示した。

※4 不良数

リードフレームのダイアタッチ部と各リード部
とを、直径80 μm の金線でワイヤボンディング
した試料を用い、170℃において80 kg/cm^2 、1.5
分の条件でトランスファー成形して封止した。そ
して、成形後の①外観不良（ふくれ発生）、②各
端子の導通状態を調べ、ふくれの発生および断線
した個数(n)を全体（50個）中の不良数n/50
として示した。

4. 図面の簡単な説明

図面は流動性試験の説明図である。



特許出願人 松下電工株式会社
代理人 弁理士 松本武彦

BEST AVAILABLE COPY